



УДК 621.039

## ИССЛЕДОВАНИЕ РАДИАЦИОННЫХ СВОЙСТВ КОМПОЗИТА ИЗ ПОЛИИМИДНОЙ МАТРИЦЫ И НАПОЛНИТЕЛЯ ИЗ СОЕДИНЕНИЙ ОБЕДННОГО УРАНА

## RESEARCH RADIATION PROPERTIES COMPOSITE MATERIAL OF POLYIMIDE MATRIX AND BACKFILLING OF DEPLETED URANIUM COMPOUND

**Литовченко Владислав Юрьевич**, студент кафедры «АСиВИЭ», Уральский Федеральный университет имени первого Президента России Б. Н. Ельцина, Россия, 620002, г. Екатеринбург, ул. Мира 19. E-mail: [xoce0396@gmail.com](mailto:xoce0396@gmail.com), Тел.: +7(992)026-96-78

**Калабурдин Алексей Владимирович**, студент кафедры «АСиВИЭ», Уральский Федеральный университет имени первого Президента России Б. Н. Ельцина, Россия, 620002, г. Екатеринбург, ул. Мира 19. E-mail: [a.calaburdin@gmail.com](mailto:a.calaburdin@gmail.com), Тел.: +7(912)278-20-15

**Ташлыков Олег Леонидович**, канд. техн. наук, доцент каф. «Атомные станции и возобновляемые источники энергии», Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина, Россия, 620002, г. Екатеринбург, ул. Мира, 19. E-mail: [otashlykov@list.ru](mailto:otashlykov@list.ru). Тел.: +7(343)375-97-37

**Vladislav Yu. Litovchenko**, student, Nuclear Power Plants and Renewables Department, Ural Federal University named after the first President of Russia B. N. Yeltsin, 620002, Mira street, 19, Yekaterinburg, Russia. E-mail: [xoce0396@gmail.com](mailto:xoce0396@gmail.com). Ph.: +7(992)026-96-78

**Alexey V. Calabourdin**, student, Nuclear Power Plants and Renewables Department, Ural Federal University named after the first President of Russia B. N. Yeltsin, 620002, Mira street, 19, Yekaterinburg, Russia. E-mail: [a.calabourdin@gmail.com](mailto:a.calabourdin@gmail.com). Ph.: +7(912)278-20-15

**Oleg L. Tashlykov**, Cand. Sci., Associate professor, Nuclear Power Plants and Renewables Department, Ural Federal University named after the first President of Russia B.N.Yeltsin, 620002, Mira str., 19, Ekaterinburg, Russia. E-mail: [otashlykov@list.ru](mailto:otashlykov@list.ru). Ph.: +7(343)375-97-37

**Аннотация:** Целью исследования было оценить потенциальное применение для поли-4,4'-дифениленоксидпиромеллитимид (Каптон) в качестве матрицы для радиационно-защитных композитов, включающих обедненный уран. Этот полиимид был выбран из-за его высокого радиационного сопротивления, которое важно для радиационно-защитного композита, чтобы выдерживать высокие дозы радиации в течении значительного периода времени. Были проанализированы химические и физические особенности для этого полиимида. Радиационно-защитные свойства полимера были изучены с использованием расчётного кода на основе метода Монте-Карло.

**Abstract:** The objective was to assess the potential for application of a poly-4,4'-diphenyleneoxidepyromellitimide (Capton) as a matrix for radiation shielding composites incorporating depleted uranium (DU). This polyimide was chosen because of its high radiation resistance, which is important for a radiation shielding composite to resist high doses of radiation for considerable periods of time. The chemical and physical properties for the polyimide were analyzed. Radiation protection properties of the polymer were studied using Monte-Carlo simulations.

**Ключевые слова:** Каптон, метод Монте-Карло, радиационно-защитные свойства, композиционный материал

**Keywords:** Capton; Monte-Carlo simulation, radiation protective properties, composite material

### ОБЩИЕ СВЕДЕНИЯ О ОБЕДНЕННОМ УРАНЕ И СПОСОБ ИЗГОТОВЛЕНИЯ КОМПОЗИТА

Обедненный уран – уран, состоящий из изотопов U-238 99,69% U-235 <0,3% и U-234 в крайне малых количествах. Он является конечным продуктом, который остается в результате

разделения изотопов урана в процессе изготовления ядерного горючего. После обогащения его радиоактивность уменьшается. Этот побочный продукт хранится в виде гексафторида урана (UF<sub>6</sub>), которого насчитывается более 700000 тонн. Хранить такое

количество отходов оказывается достаточно дорогое.

Однако обедненный уран нашёл применение в авиации, ракетостроении в качестве противовесов, танкостроении, а также в радиационной защите.

Хранимый обедненный уран, или как принято его называть DU, в виде гексафторида урана представляет собой желто-зелёные кристаллы в нормальных условиях с плотностью  $5,1 \text{ г/см}^3$ , которые при нагревании возгоняются, образуя тяжёлый газ. Он химически активен с парами воды в воздухе, поэтому его необходимо перерабатывать в более инертные формы. Одним из таких способов является технология PYRUC [1], или пиролитическое соединение урана.

Получаемые вещества можно использовать в качестве наполнителя для композиционного материала по технологии Dupoly [2].

Данный материал представляет собой композицию обедненного урана в форме оксида или тетрафторида с полимерами, такими как полиэтилен низкой или высокой плотности, полипропилен. Полимер называют матрицей, в которой уран гомогенно рассеян. Максимальные плотности продукта при массовой доле урана 90% достигали значения  $4,2 \text{ г/см}^3$  при  $\text{UO}_3$ ,  $6,1 \text{ г/см}^3$  для  $\text{UO}_2$ , с использованием микро/макроинкапсуляции достигли значения  $7,2 \text{ г/см}^3$ . Предпочтение отдают оксиду урана IV в качестве наполнителя из-за высокой его плотности, а именно  $10,97 \text{ г/см}^3$ .

Для матрицы выбирается полимер, не подвергающийся биологическому разложению и плавящийся при температуре  $120\text{--}200^\circ\text{C}$ . [2]

В патенте приводятся методы для увеличения эффективности упаковки, т. е. плотности, за счет использования нескольких вариантов обработки:

1. Прессование – сжатие при давлении  $1,72 \text{ МПа}$ , что приводит к увеличению плотности.
2. Кинетическое перемешивание для улучшения обработки экструзией.
3. Использование порошков с высокой плотностью.
4. Гранулирование порошков для использования в качестве суммарной добавки к дополнению DUpoly.
5. Спекание гранул перед использованием в качестве агрегатной добавки.

Полиэтилен является недорогим материалом, с которым можно легко обращаться и использовать его в качестве матрицы для упаковки отходов с

последующим использованием его в качестве полезного продукта. Но такая матрица имеет один существенный недостаток: маленькая стойкость к радиационному излучению.

В статье [3] приводится таблица с повреждающими дозами облучения полимеров (такие дозы, при которых прочностные свойства материалов уменьшаются в 2 раза).

Для полиэтилена высокой плотности (HD) повреждающая доза равна  $1 \text{ МГр}$  и для низкоплотного полиэтилена (LD) доза составляет  $3 \text{ МГр}$ . При больших энергиях гамма-излучения подобные материалы быстро разрушаются. Поэтому целью данного исследования является поиск и анализ информации о высокоустойчивых к ионизирующему излучению матрицах со способностью эффективно иммобилизовать отходы в результате обогащения урана, высокими механическими и химическими характеристиками.

Одним из таких высокоустойчивых полимеров является полиимиды.

#### АНАЛИЗ СВОЙСТВ ПОЛИИМИДА, ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ЕГО В КАЧЕСТВЕ МАТРИЦЫ ДЛЯ НАПОЛНИТЕЛЯ ИЗ ОБЕДНЕННОГО УРАНА

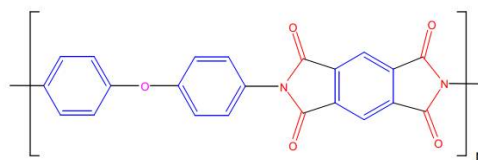


Рис.1. Структурная формула мономера поли-4,4'-дифениленоксидпиромеллитимид

Поли-4,4'-дифениленоксидпиромеллитимид, также известный как каптон, производится фирмой DuPont [4]. Он характеризуется тем, что имеет две имидные группы, которые обозначены красным цветом. Они соединяются с фенильным кольцом, который обозначен синим цветом. Один из атомов азота соединяется с группой, состоящей из двух фенилен колец, соединенных кислородом. Такая структура описывает мономер исследуемого полиимиды.

Его брутто-формула:  $(\text{C}_{22}\text{H}_{10}\text{O}_5\text{N}_2)_n$ . Плотность полиимиды  $1,31\text{--}1,42 \text{ г/см}^3$ , обладают высокой термостойкостью, высокими механическими характеристиками при повышенных температурах, стойкостью к органическим растворителям и маслам. Интервал рабочих температур значителен — от  $-200$  до  $250^\circ\text{C}$ , кратковременно — до  $300\text{--}400^\circ\text{C}$ ; они не окисляются до  $250\text{--}275^\circ\text{C}$ .

На базе полиимидов изготавливают лаки и пленки электроизоляционного назначения (пазовая изоляция, изоляция проводов и кабелей, ленточные провода и кабели и т. п.). Они используются и в качестве связующих в производстве стеклопластиков и высокомодульных композиционных материалов. При этом после завершения имидизации они теряют способность растворяться (сшиваются).

На основе полиимидов выпускаются пресс-материалы — мелкодисперсные порошки, которые могут содержать до 60-80 % наполнителей (графит, дисульфид молибдена, оксиды металлов и др.). Пресс-материалы

обладают высокими механическими характеристиками, включая ударную вязкость, высоким сопротивлением ползучести, прекрасными диэлектрическими свойствами, низким водопоглощением и малой усадкой. Применяются для изготовления изделий конструкционного, электроизоляционного и антифрикционного назначения, способных длительно работать при повышенных и низких температурах.

Пресс-материалы перерабатываются в изделия методами компрессионного прессования, пресс-литья и литьем под давлением [5].



Рис.2. Линейные коэффициенты ослабления композитов

В статье [3] приводится значение повреждающей дозы, равное 100 МГр, при которой ухудшаются механические характеристики в два раза.

К отличительным характеристикам полиимида следует отнести высокую устойчивость к радиации, механическую прочность, негорючесть, коррозионную стойкость, низкую теплопроводность, около 0,12 Вт/(м·К), то есть выступает в качестве теплоизолятора. Материал имеет стабильность в размерах, может работать в вакууме. К недостаткам можно отнести низкую устойчивость к концентрированным кислотам и щелочам. В них полиимид гидролизуеться, а также повышенное влагопоглощение (1 ... 3% за 30 сут.), поэтому он нуждается в технологической сушке (особенно при изготовлении изделий из пресс-порошков) и защите [6]. Ещё одним недостатком полиимида является более высокая цена по сравнению с полиэтиленом.

#### ОПРЕДЕЛЕНИЕ ЛИНЕЙНОГО КОЭФФИЦИЕНТА ОСЛАБЛЕНИЯ КОМПОЗИЦИОННЫХ МАТЕРИАЛОВ

Для определения линейного коэффициента ослабления композиционного материала использовался расчётный код на основе метода Монте-Карло, который в пределах погрешности согласуется с реальными экспериментами [7].

В задаче использовалась следующая модель: Точечный детектор, испускающий узкий и направленный пучок гамма-квантов с энергией 661,64 кэВ, что соответствует источнику Cs-137, на расстоянии 100 см от него располагается поверхность детектора из человеческой ткани, он представляет собой цилиндр с размерами 2,5х5 см<sup>2</sup>. Между ними в 50 см от источника находится пластина исследуемого материала размерами 5х5х1 см<sup>3</sup>. Целиком вся установка находится в воздушной сфере радиусом 250 см.

При определении линейного коэффициента ослабления существующего и ещё не изготовленного композита использовался метод смесей для нахождения плотностей с поправкой

на пористость материала. Полученные значения рассчитаны для материалов с учетом того, что наполнитель в них гомогенно рассеян. Для

некоторых композитов расчёт не был произведен в силу отсутствия данных по плотностям.

Таблица 1.

Результаты расчетов

Материал	Показания детектора $I_0 \cdot 10^{-2}$ , 1/см <sup>2</sup>	Показания детектора $I_1 \cdot 10^{-2}$ , 1/см <sup>2</sup>	Линейный коэффициент ослабления $\mu_l = \ln(I_0) - \ln(I_1)$ , см <sup>-1</sup>	Плотность, г/см <sup>3</sup>	Массовый коэффициент ослабления, $\mu = \mu_l / \rho$ , см <sup>2</sup> /г	Табличное (расчетное) значение, см <sup>-1</sup>
Свинец	5,4492	1,6461	1,197	11,34	0,106	1,18
Вольфрам	5,4492	0,8892	1,813	19,25	0,094	1,814
Уран	5,4492	0,5121	2,365	19,05	0,124	2,356
UO <sub>3</sub> (90%)+полиэтилен	5,4492	3,3837	0,476	4,21	0,113	0,47
UO <sub>2</sub> (90%)+полиэтилен	5,4492	2,6965	0,704	6,1	0,114	0,695
UF <sub>4</sub> (90%)+полиэтилен	5,4492	3,5852	0,419	3,837	0,109	-
UO <sub>2</sub> (90%)+полиимид	5,4492	2,6766	0,711	6,21	0,114	-
UO <sub>3</sub> (90%)+полиимид	5,4492	3,1498	0,548	4,879	0,112	-

## ВЫВОДЫ

В ходе анализа выбран полимер, который мог бы заменить применяющийся полиэтилен. Таким полимером оказался полиимид Каптон или поли-4,4'-дифениленоксидпиромеллитимид. Приведены результаты программы на основе метода Монте-Карло. Данные показывают, что композиты с матрицей из полиимида обладают лучшими ослабляющими свойствами по отношению к ионизирующему излучению для источника Cs-137, кроме того полиимидная матрица обладает высокой поглощающей дозой, которая превышает для полиэтилена в 30-100 раз. Сравнивая табличные данные, погрешность результатов эксперимента не превышает 5%.

## БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. Steven M. Mirsky, Stephen J. Krill, Jr. Alexander, P. Murray. Process for making uranium carbide. Patent US, no. 6030549A, 1997.
2. Paul D. Kalb, Jay W. Adams, Paul R. Lageraen Carl R. Cooley. Dupoly process for treatment of depleted uranium and production of beneficial end production. Patent US, no. 6599490B1, 1997.

3. A. I. Wozniak, V. S. Ivanov, O. A. Zhdanovich, V. I. Nazarov and A. S. Yegorov. Modern approaches to Polymer Material Protecting from Ionizing Radiation, 2017, Vol. 33, No. 5, pp. 2148-2163
4. Daniel Severin. Study of the degradation process of polyimide induced by high energetic ion irradiation: Dr. nat. sci. dis. Marburg, 2008, 22 p.
5. II Форум союза переработчиков пластмасс: полиимиды / [Электронный ресурс] - Режим доступа: <http://plastinfo.ru/information/glossary/I17/714/>
6. Высокотехнологичные пластики и изделия из них: PI (полиимид) / [Электронный ресурс] – режим доступа : <http://apc-group.ru/plastiki/poliimid-pi-t-300s.html>
7. Russkikh I. M., Seleznev E. N., Tashlykov O. L., Shcheklein S. E. Experimental and Theoretical Study of Organometallic Radiation-Protective Materials Adapted to Radiation Sources with a Complex Isotopic Composition // Physics of Atomic Nuclei, 2015, Vol. 78, No. 12, pp. 1451-1456